

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05748

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C08J11/26, C08G18/83 // C07C29/88, C07C31/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08J11/00-11/26, C08G18/83

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPIL

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 52-139196, A (Koukoku Kagaku Kogyo K.K.), 19 November, 1977 (19.11.77),	1,2,4,13-16
A	Claims; page 3, upper left column, line 11 to upper right column, line 1; page 3, lower left column, lines 16 to 17 (Family: none)	3
X	CA, 2242980, A (BASF Aktiengesellschaft), 26 February, 1999 (26.02.99), page 5, lines 1 to 7; page 5, lines 15 to 19; page 10, lines 28 to 30 & JP, 11-158320, A & DE, 19737184, A & EP, 899292, A	1,5,6, 13-15, 17
X	JP, 07-224141, A (Toyo Tire and Rubber Co., Ltd.), 22 August, 1995 (22.08.95), Par. Nos. [0009], [0015], [0016], [0019] to [0020] (Family: none)	1,7-10,13-15, 18
A	JP, 54-078798, A (ASAHI DENKA KOGYO K.K.), 23 June, 1979 (23.06.79), Claims (Family: none)	1,11-15,19

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

• Special categories of cited documents:	
“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
“E” earlier document but published on or after the international filing date	“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	“&” document member of the same patent family
“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
02 November, 2000 (02.11.00)

Date of mailing of the international search report
21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



10/088170
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

M.F

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 900206PCT	FOR FURTHER ACTION	See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP00/05748	International filing date (day/month/year) 25 August 2000 (25.08.00)	Priority date (day/month/year) 16 September 1999 (16.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08J 11/26, C08G 18/83 // C07C 29/88, 31/18		
Applicant IMITSUI TAKEDA CHEMICALS, INC.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of _____ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I Basis of the report
- II Priority
- III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV Lack of unity of invention
- V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI Certain documents cited
- VII Certain defects in the international application
- VIII Certain observations on the international application.

Date of submission of the demand 12 April 2001 (12.04.01)	Date of completion of this report 17 December 2001 (17.12.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/05748

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- the international application as originally filed
 the description:

pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

- the claims:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19)
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- the drawings:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

- the sequence listing part of the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.
 These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
 the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
 the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- contained in the international application in written form.
 filed together with the international application in computer readable form.
 furnished subsequently to this Authority in written form.
 furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
 The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
 The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. The amendments have resulted in the cancellation of:

- the description, pages _____
 the claims, Nos. _____
 the drawings, sheets/fig _____

5. This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/JP 00/05748

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	3, 11-14, 19	YES
	Claims	1, 4,-10, 15-18	NO
Inventive step (IS)	Claims	3, 11, 12, 19	YES
	Claims	1, 2, 4-10, 13-18	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-19	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Claims 1, 2, 4, 15 and 16

Document 1 (JP, 52-139196, A (Koukoku Kagaku Kogyo KK), 19 November 1977 (19.11.77); claims; page 3, upper left column, line 11 to upper right column, line 1; and page 3, lower left column, lines 16-17) discloses treatment of moulded polyurethane by decomposition using a common decomposition process, and treating amines in the liquid product of said decomposition by reaction with a carboxylic acid anhydride. Therefore, the inventions set forth in Claims 1, 2, 15 and 16 are not novel.

Claims 13 and 14

Document 1 above does not mention a polyoxyalkylene polyol as a polyol decomposition product, or mention the amine content of the polyol decomposition product; however, these inventions in the present application and the invention disclosed in Document 1 both relate to treatment of a liquid decomposition product from decomposition of a polyurethane by a common process, and therefore it will be obvious to a person skilled in the art that a polyoxyalkylene polyol will be produced by the decomposition and that the amine content will be similar.

Claims 1, 5, 6, 15 and 17



Document 2 (CA, 2242980, A (BASF AG), 26 February 1999 (26.02.99); claims; page 5, lines 1-7; and page 5, lines 15-19) disclose a method for treating amine-containing compositions containing one or more polyols obtained by decomposition of scrap polyurethane, by adding an isocyanate. Therefore, the inventions set forth in Claims 1, 7-9, 15 and 18 are not novel.

Claims 13 and 14

Document 2 above does not mention a polyoxyalkylene polyol as a polyol decomposition product, or mention the amine content of the polyol decomposition product; however, these inventions in the present application and the invention disclosed in Document 1 both relate to treatment of a liquid decomposition product from decomposition of a polyurethane by a common process, and therefore it will be obvious to a person skilled in the art that a polyoxyalkylene polyol will be produced by the decomposition and that the amine content will be similar.

Claims 1, 7-10, 15 and 18

Document 3 (JP, 07-224141, A (Toyo Tire and Rubber Co., Ltd.), 22 August 1995 (22.08.95); claims and paragraphs [0009], [0015], [0016] and [0019]-[0020]) disclose treatment of scrap moulded polyurethane by thermolysis to decompose it to polyol and polyamine, and addition polymerization of the liquid product of said decomposition with an alkylene oxide. Therefore, the inventions set forth in Claims 1, 7-10 and 18 are not novel.

Claims 13 and 14

Document 3 above does not mention a polyoxyalkylene polyol as a polyol decomposition product, or mention the amine content of the polyol decomposition product;



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/JP 00/05748

however, these inventions in the present application and the invention disclosed in Document 1 both relate to treatment of a liquid decomposition product from decomposition of a polyurethane by a common process, and therefore it will be obvious to a person skilled in the art that a polyoxyalkylene polyol will be produced by the decomposition and that the amine content will be similar.

Claims 3, 11, 12 and 19

None of the documents cited in the international search report discloses the addition of oxalic acid or urea to amine-containing polyol, and these features are not obvious to a person skilled in the art.



特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]REC'D 28 DEC 2001
WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 900206PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05748	国際出願日 (日.月.年) 25.08.00	優先日 (日.月.年) 16.09.99
国際特許分類 (IPC) Int. C17 C08J11/26, C08G18/83//C07C29/88, C07C31/18		
出願人（氏名又は名称） 三井武田ケミカル株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>4</u> ページからなる。
<input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対して訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u> </u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の單一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 12.04.01	国際予備審査報告を作成した日 17.12.01
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 中村敬子 電話番号 03-3581-1101 内線 3419
	4D 3030

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。PCT規則70.16, 70.17)

 出願時の国際出願書類

<input type="checkbox"/> 明細書	第 _____	ページ、	出願時に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 明細書	第 _____	ページ、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 明細書	第 _____	ページ、	付の書簡と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 請求の範囲	第 _____	項、	出願時に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 請求の範囲	第 _____	項、	PCT19条の規定に基づき補正されたもの
<input type="checkbox"/> 請求の範囲	第 _____	項、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 請求の範囲	第 _____	項、	付の書簡と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 図面	第 _____	ページ/図、	出願時に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 図面	第 _____	ページ/図、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 図面	第 _____	ページ/図、	付の書簡と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分	第 _____	ページ、	出願時に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分	第 _____	ページ、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
<input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分	第 _____	ページ、	付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
 PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- この国際出願に含まれる書面による配列表
 この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- 明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかつたものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1. における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条 (PCT35条(2)) に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 3, 11-14, 19	有
	請求の範囲 1, 2, 4-10, 15-18	無

進歩性 (I S)	請求の範囲 3, 11, 12, 19	有
	請求の範囲 1, 2, 4-10, 13-18	無

産業上の利用可能性 (I A)	請求の範囲 1-19	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

請求の範囲 1、2、4、15、16

文献1: JP 52-139196 A (興国化学工業株式会社), 19. 11月. 1977 (19. 11. 77), 特許請求の範囲、第3頁目左上欄第11行目一右上欄第1行目及び第3頁目左下欄第16行目一第17行目には、ポリウレタンフォームを一般的な分解方法で分解し、該分解液中に存在するアミンを無水カルボン酸で加熱反応させて処理する方法が記載されているから、請求項1、2、15、16に記載された発明は、新規性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献1には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献1に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 1、5、6、15、17

文献2: CA 2242980 A (BASF Aktiengesellschaft), 26. 2月. 1999 (26. 02. 99), 特許請求の範囲、第5頁第1行目一第7行目、第5頁第15行目一第19行目には、ポリウレタンスクラップを分解して得られた1種類以上のポリオールを含むアミン含有組成物に、イソシアナートを添加する処理方法が記載されているから、請求項1、7-9、15、18に記載された発明は、新規性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献2には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献1に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 1、7-10、15、18

文献3: JP 07-224141 A (東洋ゴム工業株式会社), 22. 8月. 1995 (22. 08. 95), 特許請求の範囲、[0009]、[0015]、[0016]、[0019]-[0020]には、ポリウレタンフォーム屑を加熱分解によってポリオールとポリアミンに分解し、該分解液にアルキレンオキシドを付加重合させる処

補充欄（いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること）

第 V. 欄の続き

性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献3には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献1に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 3、11、12、19

アミン類を含有するポリオールにシュウ酸、あるいは尿素を加えることは、国際調査に引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明なものでもない。



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
 [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 900206PCT	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05748	国際出願日 (日.月.年) 25.08.00	優先日 (日.月.年) 16.09.99
出願人 (氏名又は名称) 武田薬品工業株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (PCT18条) の規定に従い出願人に送付する。この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 この国際出願に含まれる書面による配列表

この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. 請求の範囲の一部の調査ができない (第I欄参照)。

3. 発明の単一性が欠如している (第II欄参照)。

4. 発明の名称は 出願人が提出したものと承認する。

次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は 出願人が提出したものと承認する。

第III欄に示されているように、法施行規則第47条 (PCT規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1ヶ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 出願人が示したとおりである。

なし

出願人は図を示さなかった。

本図は発明の特徴を一層よく表している。



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08J 11/26, C08G 18/83 // C07C 29/88, C07C 31/18

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08J 11/00-11/26, C08G 18/83

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

W P I L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 52-139196, A (興国化学工業株式会社) 19.11月. 1977 (19.11.77) 特許請求の範囲、第3頁左上欄第11行目～右上欄第1行目、第3頁左下欄第16行目～第17行目 (ファミリーなし)	1, 2, 4 13-16
A	CA, 2242980, A (BASF Aktiengesellschaft) 26.2月. 1999 (26.02.99) 第5頁第1行目～第7行目、第5頁第15行目～第19行目、第10頁第28行目～第30行目 & JP, 11-158320, A & D E, 19737184, A & EP, 899292, A	3
X		1, 5, 6, 13-15, 17

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
もの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日
以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する
文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって
出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論
の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明
の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以
上の文献との、当業者にとって自明である組合せに
よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

増田亮子

4D 3030

電話番号 03-3581-1101 内線 3419

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
X	JP, 07-224141, A (東洋ゴム工業株式会社) 22.8月.1995 (22.08.95) 段落番号[0009], [0015], [0016], [0019]-[0020] (ファミリーなし)	1, 7- 10, 13- 15, 18
A	JP, 54-078798, A (旭電化工業株式会社) 23.6月.1979 (23.06.79) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 11- 15, 19

1088170

補充欄（いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること）

第 V. 欄の続き

理方法が記載されているから、請求項 1、7-10、15、18 に記載された発明は、新規性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献 3 には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献 1 に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 3、11、12、19

アミン類を含有するポリオールにシュウ酸、あるいは尿素を加えることは、国際調査に引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明なものでもない。



101088170

特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]REC'D 14 JUN 2002
WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 900206 PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05748	国際出願日 (日.月.年) 25.08.00	優先日 (日.月.年) 16.09.99
国際特許分類 (IPC) Int. C17 C08J11/26, C08G18/83//C07C29/88, C07C31/18		
出願人（氏名又は名称） 三井武田ケミカル株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>4</u> ページからなる。
<input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対して訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u> </u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見
VERSION CORRIGÉE

RECEIVED
SEP 6 2002
TC 1700

国際予備審査の請求書を受理した日 12.04.01	国際予備審査報告を作成した日 17.12.01
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 中村敬子 電話番号 03-3581-1101 内線 3419
	4D 3030

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。PCT規則70.16, 70.17)

 出願時の国際出願書類

- | | | | |
|-------------------------------------|---------|--------|----------------------|
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ | ページ、 | 出願時に提出されたもの |
| 明細書 | 第 _____ | ページ、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| 明細書 | 第 _____ | ページ、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ | 項、 | 出願時に提出されたもの |
| 請求の範囲 | 第 _____ | 項、 | PCT19条の規定に基づき補正されたもの |
| 請求の範囲 | 第 _____ | 項、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| 請求の範囲 | 第 _____ | 項、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ | ページ/図、 | 出願時に提出されたもの |
| 図面 | 第 _____ | ページ/図、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| 図面 | 第 _____ | ページ/図、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ | ページ、 | 出願時に提出されたもの |
| 明細書の配列表の部分 | 第 _____ | ページ、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| 明細書の配列表の部分 | 第 _____ | ページ、 | 付の書簡と共に提出されたもの |

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
- PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
- 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- この国際出願に含まれる書面による配列表
- この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
- 出願後に、この国際予備審査（または調査）機関に提出された書面による配列表
- 出願後に、この国際予備審査（または調査）機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
- 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
- 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- 明細書 第 _____ ページ
- 請求の範囲 第 _____ 項
- 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)



V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条 (PCT35条(2)) に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 3, 11-14, 19 請求の範囲 1, 2, 4-10, 15-18	有 無
進歩性 (IS)	請求の範囲 3, 11, 12, 19 請求の範囲 1, 2, 4-10, 13-18	有 無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 1-19 請求の範囲	有 無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

請求の範囲 1、2、4、15、16

文献1: J P 52-139196 A (興国化学工業株式会社), 19. 11月. 1977 (19. 11. 77), 特許請求の範囲、第3頁目左上欄第11行目一右上欄第1行目及び第3頁目左下欄第16行目一第17行目には、ポリウレタンフォームを一般的な分解方法で分解し、該分解液中に存在するアミンを無水カルボン酸で加熱反応させて処理する方法が記載されているから、請求項1、2、15、16に記載された発明は、新規性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献1には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献1に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 1、5、6、15、17

文献2: CA 2242980 A (BASF Aktiengesellschaft), 26. 2月. 1999 (26. 02. 99), 特許請求の範囲、第5頁第1行目一第7行目、第5頁第15行目一第19行目には、ポリウレタンスクラップを分解して得られた1種類以上のポリオールを含むアミン含有組成物に、イソシアナートを添加する処理方法が記載されているから、請求項1、7-9、15、18に記載された発明は、新規性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献2には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献1に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 1、7-10、15、18

文献3: J P 07-224141 A (東洋ゴム工業株式会社), 22. 8月. 1995 (22. 08. 95), 特許請求の範囲、[0009]、[0015]、[0016]、[0019]-[0020]には、ポリウレタンフォーム屑を加熱分解によってポリオールとポリアミンに分解し、該分解液にアルキレンオキシドを付加重合させる処



補充欄（いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること）

第 V. 欄の続き

理方法が記載されているから、請求項 1、7-10、15、18 に記載された発明は、新規性を有しない。

請求の範囲 13、14

上記文献 3 には、分解ポリオールがポリオキシアルキレンポリオールであること、及び分解ポリオール中のアミン類含有量は記載されていないが、本願発明と文献 1 に記載された発明はいずれもポリウレタンを一般的な方法で分解した分解液の処理に関するものであるから、分解によりポリオキシアルキレンポリオールが生成し、アミン類も同程度の含有量となることは、当業者にとって自明のことである。

請求の範囲 3、11、12、19

アミン類を含有するポリオールにシュウ酸、あるいは尿素を加えることは、国際調査に引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明なものでもない。



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 05 June 2001 (05.06.01)	ETATS-UNIS D'AMERIQUE in its capacity as elected Office
International application No. PCT/JP00/05748	Applicant's or agent's file reference 900206PCT
International filing date (day/month/year) 25 August 2000 (25.08.00)	Priority date (day/month/year) 16 September 1999 (16.09.99)
Applicant KODAMA, Katsuhisa et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

12 April 2001 (12.04.01)

in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p>	<p>Authorized officer CROCI Christelle</p>
<p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

Date of mailing (day/month/year)
16 octobre 2001 (16.10.01)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OKAMOTO, Hiroyuki
Kawaramachi NK Building
8-5, Kawaramachi 4-chome
Chuo-ku
Osaka-shi
Osaka 541-0048
JAPON

Applicant's or agent's file reference 900206PCT	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/05748	International filing date (day/month/year) 25 août 2000 (25.08.00)

1. The following indications appeared on record concerning:

the applicant the inventor the agent the common representative

Name and Address TAKEDA CHEMICAL INDUSTRIES, LTD. 1-1, Doshomachi 4-chome Chuo-ku Osaka-shi Osaka 541-0045 Japan (for all designated States except US)	State of Nationality JP	State of Residence JP
Telephone No.		
Facsimile No.		
Teleprinter No.		

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

the person the name the address the nationality the residence

Name and Address MITSUI TAKEDA CHEMICALS, INC. 2-5, Kasumigaseki 3-chome Chiyoda-ku Tokyo 100-6009 Japan (for all designated States except US)	State of Nationality JP	State of Residence JP
Telephone No.		
Facsimile No.		
Teleprinter No.		

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Shinji IGARASHI Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---

PCT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

Date of mailing (day/month/year)
19 October 2001 (19.10.01)

Applicant's or agent's file reference
900206PCT

International application No.
PCT/JP00/05748

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OKAMOTO, Hiroyuki
Kawaramachi NK Building
8-5, Kawaramachi 4-chome
Chuo-ku
Osaka-shi
Osaka 541-0048
JAPON

IMPORTANT NOTIFICATION

International filing date (day/month/year)
25 August 2000 (25.08.00)

1. The following indications appeared on record concerning:

the applicant the inventor the agent the common representative

Name and Address KODAMA, Katsuhisa Chemical Products Company of Takeda Chemical Industries, Ltd. 17-85, Juso-honmachi 2-chome Yodogawa-ku, Osaka-shi Osaka 532-8686 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

the person the name the address the nationality the residence

Name and Address KODAMA, Katsuhisa E-232, 11-35, Otanicho Nishinomiya-shi Hyogo 662-0054 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Shinji IGARASHI Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)Date of mailing (day/month/year)
27 August 2002 (27.08.02)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OKAMOTO, Hiroyuki
Kawaramachi NK Building
8-5, Kawaramachi 4-chome
Chuo-ku
Osaka-shi
Osaka 541-0048
JAPONApplicant's or agent's file reference
900206PCT

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.
PCT/JP00/05748International filing date (day/month/year)
25 August 2000 (25.08.00)

1. The following indications appeared on record concerning:

 the applicant the inventor the agent the common representativeName and Address
KOBE STEEL, LTD.
10-26, Wakinohama-cho 2-chome
Chuo-ku
Kobe-shi
Hyogo 651-8585
Japan
(applicant for all designated States except US)State of Nationality
JP State of Residence
JP
Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

 the person the name the address the nationality the residenceName and Address
KOBE STEEL, LTD.
10-26, Wakinohama-cho 2-chome
Chuo-ku
Kobe-shi
Hyogo 651-8585
Japan
(applicant for all designated States except CN and
US)State of Nationality
JP State of Residence
JP
Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Shinji IGARASHI

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2001年3月22日 (22.03.2001)

PCT

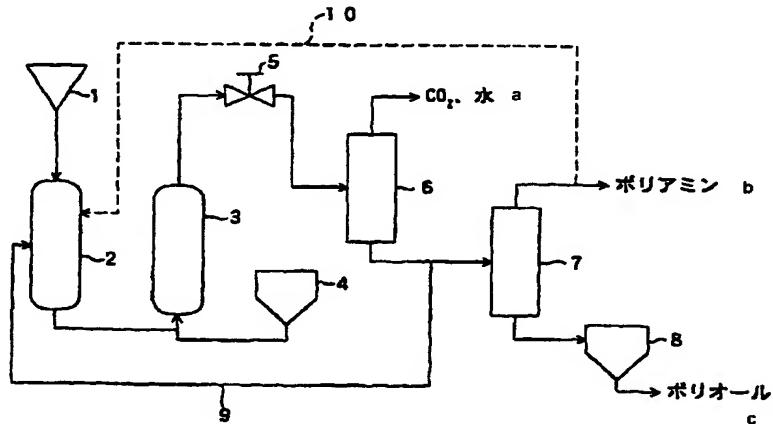
(10) 国際公開番号
WO 01/19907 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C08J 11/26, C08G 18/83 // C07C 29/88, 31/18
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/05748
- (22) 国際出願日: 2000年8月25日 (25.08.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平11/261346 1999年9月16日 (16.09.1999) JP
特願平11/261347 1999年9月16日 (16.09.1999) JP
特願平11/306696 1999年10月28日 (28.10.1999) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 武田薬品工業株式会社 (TAKEDA CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒541-0045 大阪府大阪市中央区道修町四丁目1番1号 Osaka (JP). 株式会社 神戸製鋼所 (KOBE STEEL, LTD.) [JP/JP]; 〒651-8585 兵庫県神戸市中央区臨浜町一丁目3番18号 Hyogo (JP). 本田技研工業株式会社 (HONDA MOTOR CO., LTD.) [JP/JP]; 〒107-8556 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 児玉勝久 (KODAMA, Katsuhiro) [JP/JP]. 村山公一 (MURAYAMA, Kouichi) [JP/JP]. 熊木高志 (KUMAKI, Takashi) [JP/JP]; 〒532-8686 大阪府大阪市淀川区十三本町二丁目17番85号 武田薬品工業株式会社 化学品カンパニー内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 岡本寛之 (OKAMOTO, Hiroyuki); 〒541-0048 大阪府大阪市中央区瓦町四丁目8番5号 瓦町NKビル Osaka (JP).

[統葉有]

(54) Title: METHOD OF TREATING POLYOL RECOVERED THROUGH DECOMPOSITION AND POLYOL RECOVERED THROUGH DECOMPOSITION

(54) 発明の名称: 分解回収ポリオールの処理方法および分解回収ポリオール



a...CO₂, WATER
b...POLYAMINE
c...POLYOL

(57) Abstract: A method of treating a polyol recovered through the decomposition of a polyurethane resin; and a polyol recovered through decomposition which is obtained by a treatment by the method. The method of treatment comprises suitably using any of the following treatments: adding an organic dicarboxylic acid or its anhydride to an amine-containing polyol recovered through decomposition and removing the resultant precipitate; adding an isocyanate compound to an amine-containing polyol recovered through decomposition; adding an oxide compound to an amine-containing polyol recovered through decomposition; and adding urea to an amine-containing polyol recovered through decomposition.

WO 01/19907 A1

[統葉有]



- (81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
 (84) 指定国(広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
 — 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(57) 要約:

ポリウレタン樹脂を分解することによって得られる分解回収ポリオールを処理するために用いられる分解回収ポリオールの処理方法、およびその処理方法で処理することによって得られる分解回収ポリオールである。この処理方法では、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理のいずれかが、適宜用いられる。

明細書

分解回収ポリオールの処理方法および分解回収ポリオール

5 技術分野

本発明は、分解回収ポリオールの処理方法および分解回収ポリオール、詳しくは、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られる分解回収ポリオールを処理する方法、およびその処理方法で処理することによって得られる分解回収ポリオールに関する。

10

背景技術

近年、地球環境保護、資源保護の立場からプラスチック材料のリサイクルが強く望まれるようになってきている。車両のシートや家具類のクッション材として使用される軟質ポリウレタンフォームや、住宅や冷蔵庫などの断熱材として使用される硬質ポリウレタンフォームなどのポリウレタン樹脂についても、その事情は同じであり、マテリアルリサイクル法、あるいは、ケミカルリサイクル法など種々のリサイクル法が検討され、一部で実用化されつつある。

ポリウレタン樹脂のケミカルリサイクル法としては、例えば、アルカリ分解法、グリコリシス法（グリコール分解法）、アミノリシス法（アミン分解法）、加水分解法などが知られており、低分子量のグリコール類を用いて分解するグリコリシス法が一部で実用化されている。

しかし、アルカリ分解法、アミノリシス法および加水分解法では、分解回収されるポリオール中に、出発原料であるポリイソシアネートの中間原料であるポリアミンや、分解剤として使用されるアミン化合物が溶存するため、これらアミン類をそのまま含む分解回収ポリオールを、ポリウレタン樹脂の原料として再使用に供すると、ポリオールとポリイソ

シアネートとの正常な反応を阻害して、不良品の発生を招くなどの要因となる。

そのため、アルカリ分解法、アミノリシス法および加水分解法では、得られた分解回収ポリオールから、蒸留操作などによって、アミン類を除去するようしているが、蒸留操作などでは、幾分かのアミン類は除去できるものの、完全に除去することは困難で、通常、数重量%のアミン類が分解回収ポリオール中に存在する状態となる。そこで、例えば、分解回収ポリオールを塩酸などの鉱酸を含む水で洗浄したり、あるいは、塩酸ガスなどを吹き込んで中和し濾過する方法（特開昭55-86814号公報、特開昭57-80438号公報参照）などが提案されている。しかし、前者の方法では、一般にポリオールが親水性であり、水層との分離が困難であること、また、後者の方法では、生成するアミンの塩が結晶化しにくく、濾別が困難であるなどの理由から、未だ実用化されるには至っていない。

一方、例えば、車両のシートなどに使用される軟質ポリウレタンフォームは、250～320℃の高温高圧水を用いて加水分解を行なうことで、容易に、出発原料であるポリオールと、出発原料であるポリイソシアネートの中間原料であるポリアミンとに、ほぼ完全に分解されることが知られている（例えば、国際公開WO 98/34904号公報参照）。このようにして得られる分解物を、真空蒸留処理することにより、ポリアミンをある程度回収することはできるが、分解回収ポリオール中には、やはり少量のポリアミンが残存し、塩基度が高く、そのままでは、ウレタン樹脂の原料として再使用に供することが困難である。また、この場合においても、分解回収ポリオール中に残存するポリアミンを、塩酸などの鉱酸を用いて中和し、塩として除く方法も知られるが、上記したように、ポリアミンの塩は晶出しにくく濾別することが困難である。また、分解回収ポリオール中に、ポリアミンの塩が残存した場合には、

そのポリオールの酸価が高くなり、ウレタン樹脂の原料として再使用に供した時には、ウレタン化反応を遅延するなどの不具合を生じる。

しかるに、以上に述べたように、アルカリ分解法、アミノリシス法および加水分解法などのケミカルリサイクル法によって得られる分解回収ポリオール中のアミン類を、如何に処理して、ポリウレタン樹脂の原料として良好に再使用に供し得る分解回収ポリオールを得るかが、現在の重要な課題となっている。

本発明の目的は、分解回収ポリオール中に含まれるアミン類を、簡易な処理により、除去または除去せずに不活性化して、ポリウレタン樹脂の原料として良好に再使用に供し得る、分解回収ポリオールの処理方法、およびその処理方法で処理することによって得られる分解回収ポリオールを提供することにある。

発明の開示

15 本発明は、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、その分解回収ポリオールを再使用に供し得るようにアミン類を処理することを特徴としている。このような処理を行なえば、分解回収ポリオールを、ポリウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、20 品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

また、本発明は、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去することによって処理することが好ましい。このような処理によれば、有機ジカルボン酸またはその無水物を用いているので、塩酸を用いた場合に比べて、容易に析出物を生成させることができるために、アミン類を簡単かつ効率よく除去して、品質の高いポリオールを得ることができる。しかも、有機

ジカルボン酸またはその無水物は、塩酸に比べるとそれほどウレタン化反応を阻害するものではないので、たとえ残存しても、ポリウレタン樹脂の原料として良好に再使用でき、さらには、除去された析出物を処分する場合においても、塩素あるいは塩酸由来の塩素含有化合物のように有害物質が発生する可能性も少なく、環境汚染の原因となるおそれも少ない。

また、この処理においては、有機ジカルボン酸またはその無水物が、シュウ酸であることが好ましく、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を、アミン類のアミノ基 1 当量あたり有機ジカルボン酸またはその無水物のカルボキシル基が 0.3 ~ 1.05 当量となるような割合で加えることが好ましい。

また、本発明は、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加えることによって処理することが好ましい。このような処理によれば、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加えるのみで、アミン類を除去することなくそのまま不活性化することができ、簡易かつ工業的に実施にすることができる。しかも、このような処理によって得られる分解回収ポリオールは、ポリウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、また、酸による中和処理のように酸価が高くなってしまうこともないので、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

また、この処理においては、アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類のアミノ基 1 当量に対して、イソシアネート化合物を、そのイソシアネート化合物のイソシアネート基が 0.8 ~ 1.5 当量となるような割合で加えることが好ましい。

また、本発明は、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加えることによって処理することが好ましい。このような処

理によれば、分解回収されるポリオールにオキシド化合物を加えるのみで、アミン類を除去することなくそのまま不活性化することができ、簡易かつ工業的に実施にすることができる。しかも、このような処理によって得られるポリオールは、ウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、また、酸による中和処理のように酸価が高くなってしまうこともないので、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

また、この処理においては、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を無触媒下において加えることが好ましく、また、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加え、80～140℃で加熱することが好ましく、また、アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、オキシド化合物を、そのオキシド化合物のオキシド基が1.5～3.0当量となるような割合で加えることが好ましい。

また、本発明は、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加えることによって処理することが好ましい。このような処理によれば、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加えるのみで、アミン類を除去することなくそのまま不活性化することができ、簡易かつ工業的に実施にすることができる。しかも、このような処理によって得られる分解回収ポリオールは、ウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

また、この処理においては、アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、尿素を、0.4～1.5当量の割合で加えることが好ましい。

また、本発明においては、アミン類を含有する分解回収ポリオールが、ボリエーテルポリオールであることが好ましく、また、アミン類を含

有する分解回収ポリオール中のアミン類の含量が、5重量%以下であることが好ましい。

また、本発明の分解回収ポリオールの処理方法は、ポリウレタン樹脂を加水分解する加水分解工程、および加水分解により生成した分解生成物を回収する回収工程を備えるポリウレタン樹脂の分解回収方法の、回収工程に、好適に適用される。

また、本発明は、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理を行なうことによって得られる分解回収ポリオール、および、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理を行なうことによって得られる分解回収ポリオール、および、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理を行なうことによって得られる分解回収ポリオール、さらには、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理を行なうことによって得られる分解回収ポリオールをも含むものである。

これらの分解回収ポリオールは、ポリウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明の分解回収ポリオールの処理方法が適用される、ポリウレタン樹脂の分解回収方法を工業的に実施するための装置の一実施形態を示す概略図である。

発明を実施するための最良の形態

本発明の処理方法の対象となる分解回収ポリオールは、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるポリオールであって、そのポリオール中にアミン類を含有するものである。

分解の対象とされるポリウレタン樹脂は、ポリオールとポリイソシアネートとの反応により得られる合成高分子化合物であって、例えば、軟質、半硬質あるいは硬質ポリウレタンフォーム、注型あるいは熱可塑ポリウレタンエラストマーなどが挙げられる。また、このようなポリウレタン樹脂を分解する方法は、特に限定されることなく公知の方法でよく、例えば、ケミカルリサイクル法として、アルカリ分解法、グリコリシス法（グリコール分解法）、アミノリシス法（アミン分解法）、加水分解法およびこれらの分解方法が組み合わされた方法などが挙げられる。

ポリオールは、ポリウレタン樹脂の出発原料となる、水酸基を少なくとも2個以上有する化合物であって、例えば、低分子量ポリオールや高分子量ポリオールなどが挙げられる。

低分子量ポリオールとしては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,4-ブチレングリコール、1,6-ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ビスフェノールA、水素化ビスフェノールA、キシレングリコールなどの低分子量ジオール、例えば、グリセリン、1,1,1-トリス（ヒドロキシメチル）プロパンなどの低分子量トリオール、例えば、D-ソルビトール、キシリトール、D-マンニトール、D-マンニットなどの水酸基を4個以上有する低分子量ポリオールなどが挙げられる。

また、高分子量ポリオールとしては、例えば、ポリエーテルポリオール（ポリオキシアルキレンポリオール）、ポリエステルポリオール、ポ

リカーボネットポリオール、アクリルポリオール、エポキシポリオール、天然油ポリオール、シリコンポリオール、フッ素ポリオール、ポリオレフィンポリオールなどが挙げられる。

これらポリオールのうち、高分子量ポリオール、とりわけ、数平均分子量が800～20000程度の高分子量ポリオールが、本発明の処理方法の対象とするポリオールとして好適であり、とりわけ、ポリエーテルポリオールが好適である。

ポリエーテルポリオールとしては、例えば、2個以上の活性水素基を有する開始剤に、エチレンオキシドおよび/またはプロピレンオキシドなどのアルキレンオキシドを付加反応させることによって得られる、ポリオキシエチレングリコールおよび/またはポリオキシプロピレングリコール（これらのランダムおよび/またはブロック共重合体を含む）や、例えば、テトラヒドロフランなどの開環重合によって得られるポリテトラメチレンエーテルグリコールなどが挙げられる。

また、ポリオールに含有されるアミン類は、例えば、ポリウレタン樹脂の分解によってポリオールとともに生成されるポリイソシアネートの中間原料としてのポリアミンや、アミノリシス法により分解する際の分解剤としてのアミン化合物などが挙げられる。

ポリイソシアネートの中間原料としてのポリアミンは、アミノ基を少なくとも2個以上有する化合物であって、例えば、ジフェニルメタンジイソシアネート（MDI）の中間原料であるジアミノジフェニルメタン（MDA）、トリレンジイソシアネート（TDI）の中間原料であるトリレンジアミン（TDA）などの芳香族ジアミン、例えば、キシリレンジイソシアネート（XDI）の中間原料であるキシリレンジアミン（XDA）、テトラメチルキシリレンジイソシアネート（TMXDI）の中間原料であるテトラメチルキシリレンジアミン（TMXDA）などの芳香脂肪族ジアミン、例えば、3-イソシアナトメチル-3,5,5-ト

リメチルシクロヘキシリソシアネート (IPDI) の中間原料である 3-アミノメチル-3, 5, 5-トリメチルシクロヘキシリアミン (IPDA) 、4, 4' -メチレンビス (シクロヘキシリソシアネート) (H_{1,2}MDI) の中間原料である 4, 4' -メチレンビス (シクロヘキシリアミン) (H_{1,2}MDA) 、ビス (イソシアナトメチル) シクロヘキサン (H₆XDI) の中間原料であるビス (アミノメチル) シクロヘキサン (H₆XDA) などの脂環族ジアミン、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート (HDI) の中間原料であるヘキサメチレンジアミン (HDA) などの脂肪族ジアミン、および、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート (クルードMDI、ポリメリックMDI) の中間原料であるポリメチレンポリフェニルボリアミンなどが挙げられる。

また、アミノリシス法により分解する際の分解剤としてのアミン化合物は、例えば、モノアミノ化合物であってもよいが、好ましくは、上記したボリアミンと同様のものが挙げられる。

したがって、アミン類が含有される分解回収ポリオールは、より具体的には、例えば、ポリウレタン樹脂が分解されることにより得られる、ウレタン樹脂の出発原料であるポリオールと、同じく出発原料であるポリイソシアネートの中間原料であるボリアミンとの混合物や、さらには、これらと分解剤としてのアミン化合物との混合物などが挙げられる。

また、本発明の処理方法では、その対象とするポリオール中に、このようなアミン類が、5重量%以下、好ましくは、4重量%以下、さらには好ましくは、0.1～3重量%の割合で含有されていることが好ましい。アミン類が、この値を超える割合で含有されていると、後述するように、本発明の処理方法の処理により生成するアミン誘導体が多くなってしまい、用途によっては再使用に供することができない場合がある。

そして、本発明の処理方法では、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、分解回収ポ

リオールを再使用に供し得るようにアミン類を処理する。このような処理は、より具体的には、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理から選択されるいずれかの処理が、好適に用いられる。このような各種の処理の条件は、その分解回収ポリオールの、分解時および回収時の条件によって、適宜決定すればよい。

10 そして、本発明の処理方法は、とりわけ、ポリウレタン樹脂を流動化する流動化工程、流動化されたポリウレタン樹脂を加水分解する加水分解工程、および加水分解により生成した分解生成物を回収する回収工程を備えるポリウレタン樹脂の分解回収方法の、回収工程に、好適に適用される。

15 以下、本発明の処理方法を、このようなポリウレタン樹脂の分解回収方法に適用した例として、より具体的に説明する。なお、図1は、このような分解回収方法を工業的に実施するための装置の一実施形態を示しており、この図1を参照して説明する。ただし、図1は概略図であって、ポンプや加熱装置などの附帯手段は省略されている。

20 この分解回収方法の対象となるポリウレタン樹脂は、上記したように、例えば、軟質、半硬質あるいは硬質ポリウレタンフォームや、注型あるいは熱可塑ポリウレタンエラストマーなどであって、より具体的には、これらを、各種の家庭用または産業用の製品として成形加工する際に生ずる切断片および切屑や、これらの製品の使用後の廃品などが対象とされる。なお、これらの製品中に、例えば、繊維、皮革、合成皮革、金属などが多少含まれていても差し支えはないが、処理しやすいように、適宜、所定の大きさに、裁断または粉碎しておくことが好ましい。

まず、流動化工程では、投入手段としてのホッパ1から投入されたポリウレタン樹脂を流動化槽2内において流動化させる。流動化させる方法としては、例えば、ポリウレタン樹脂にアミン化合物を作用させるアミノリシス、分散媒中にポリウレタン樹脂を物理的攪拌によって分散させるスラリー化、ポリウレタン樹脂を溶媒で溶解させる可溶化などの方法が挙げられる。好ましくは、アミノリシスが用いられる。

アミノリシスでは、液状とされたアミン化合物中に、ポリウレタン樹脂を加え、約120～220℃、好ましくは、約150～200℃に加熱して、ポリウレタン樹脂を流動化させるようにする。加熱温度がこれより低いと、流動化に時間がかかる場合があり、一方、加熱温度がこれより高いと、アミン化合物の分解や重合が起こり流動化できない場合がある。また、このアミノリシスにおいて用いられる分解剤としてのアミン化合物は、ポリウレタン樹脂の加水分解後に生成するポリアミンであることが好ましい。このようなポリアミンを還流して使用すれば、加水分解後の分離回収が容易となり、またコストの低減を図ることができる。さらに、アミン化合物には、ポリオール化合物を配合してもよい。ポリオール化合物を配合することによって、系中の粘度を低下させて、均一に流動化させることができる。アミン化合物とポリオール化合物とを併用する場合の配合割合は、アミン化合物1重量部に対し、ポリオール化合物が0.5～5重量部の範囲であることが好ましい。ポリオール化合物の配合割合がこれより高いと、ポリウレタン樹脂が良好に流動化しない場合がある。また、用いられるポリオール化合物は、上記と同様の理由により、ポリウレタン樹脂の加水分解後に生成するポリオールであることが好ましい。

より具体的には、図1に示すように、後述する脱水槽6と分離槽7との途中から、流動化槽2に接続する還流ライン9を設けて、ポリウレタン樹脂の加水分解後により生成するポリアミンおよびポリオールの混合

物を流動化槽 2 内に還流することによって、アミノリシスを行なうよう
にすればよい。なお、分離槽 7 の下流側のポリアミン回収ラインから流
動化槽 2 に接続する還流ライン 10 を設けて、ポリアミンのみを還流す
るようにしてもよく、またはこれら還流ライン 9 および 10 を併用する
5 ようにしてもよい。

このようにして流動化されたポリウレタン樹脂は、次いで、加水分解
工程において、加水分解される。なお、流動化工程において流動化され
たポリウレタン樹脂中に繊維や金属などが混在している場合には、図 1
には示していないが、必要により濾過手段などを用いて、これら繊維や
10 金属などを除き、その後に、加水分解工程に移行することが好ましい。

加水分解は、加水分解槽 3 内において、例えば、給水槽 4 から供給さ
れる超臨界水または高温高圧水を用いて、200～400℃、好ましく
は、250～320℃で、この温度域で水が液状を保ち得る以上の圧力
下において行なわれる。この温度より低いと、分解速度が遅い場合があ
15 り、一方、この温度より高いと、生成するポリオールあるいはポリアミ
ンの分解または副反応が生じる場合がある。使用される水の重量は、例
えば、流動化されたポリウレタン樹脂 1 重量部あたり、0.3～1.0.
0 重量部（以下「加水比」という。）であることが好ましく、加水比が
、0.3～5.0 であることがさらに好ましい。加水比がこれより低い
20 と、分解が不完全となる場合があり、一方、加水比がこれより高いと、
エネルギー消費が大きく不経済となる場合がある。なお、加水分解時に
、少量のアルカリ金属水酸化物やアンモニアなどを触媒として用いても
よい。

そして、この加水分解により、流動化されたポリウレタン樹脂は、そ
の出発原料であるポリオールと、出発原料であるポリイソシアネートの
25 中間原料であるポリアミンとに分解される。

次いで、得られた分解生成物を回収工程において、分離および回収す

るのであるが、その前に、加水分解に使用された水、および加水分解により生成した炭酸ガスを除去するために、脱水工程を備えることが好ましい。脱水工程における脱水および脱ガスは、脱水槽6内において、例えば、単蒸留、フラッシュ蒸留、減圧蒸留、吸着、乾燥など公知の方法を用いて行なうことができる。好ましくは、フラッシュ蒸留が用いられる。フラッシュ蒸留では、加水分解工程において高圧となっている水および炭酸ガスを、圧力調節弁5などを用いて、大気圧下に開放するのみの簡易な操作により、水および炭酸ガスを減圧蒸発させることができる。

10 次いで、回収工程において、水および炭酸ガスが除去されたポリオールとアミン類（このアミン類は、主として出発原料であるポリイソシアネートの中間原料であるポリアミンであるが、アミノリシスに用いられる分解剤としてのアミン化合物が含まれる。）との混合物から、ポリオールとアミン類とのそれぞれに分離して回収する。この工程において、
15 本発明の処理方法が適用される。

この回収工程においては、本発明の処理方法を用いて、ポリオールとアミン類との混合物を直接処理してもよいが、好ましくは、まず、分離工程において、粗ポリオールと粗アミン類とに粗分離し、得られた粗ポリオールを、次の処理工程において、本発明の処理方法によって処理す
20 ることが好ましい。

分離工程におけるポリオールとアミン類との粗分離は、分離槽7内において、例えば、蒸留、抽出、遠心分離、吸着、乾燥など公知の方法を用いて行なうことができる。高分子量ポリオールを回収する場合には、蒸留が好ましく用いられる。蒸留によれば、軽沸分として粗アミン類を、重沸分として粗ポリオールを、それぞれ効率よく分離できる。なお、この分離工程においては、上記したように、ポリオール中に含まれるアミン類の含量が5重量%以下となるように粗分離することが好ましい。

アミン類の含量が5重量%を超えると、上記したように、処理後のポリオール中のアミン誘導体が多くなってしまい、用途によっては再使用に供することができない場合がある。

そして、処理工程においては、処理槽8内において、本発明の処理方法を用いて、粗ポリオール、つまり、アミン類を含有するポリオールを処理する。この処理は、上記したように、例えば、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理、例えば、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理、例えば、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理、例えば、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理が、適宜用いられる。

アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理では、アミン類を含有するポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えることにより、アミン類を有機ジカルボン酸の塩として析出させ、次いで、この析出物を除去することにより行なわれる。

この処理方法において用いられる有機ジカルボン酸またはその無水物としては、例えば、シュウ酸、コハク酸、マレイン酸、無水マレイン酸などが挙げられる。好ましくは、シュウ酸および無水マレイン酸が挙げられ、さらに好ましくは、シュウ酸が挙げられる。また、有機ジカルボン酸またはその無水物を加える量は、アミン類のアミノ基1当量に対して、有機ジカルボン酸またはその無水物のカルボキシル基が0.3～1.05当量、好ましくは、0.5～1.03当量、さらに好ましくは、0.7～1.01当量となるような割合であることが好ましい。この当量より少ないと、塩が析出しにくく、または必要な量のアミン類が析出せずアミン類を完全に除去できない場合がある。一方、この当量より

多いと、処理後のポリオールに有機ジカルボン酸またはその無水物が残存して、品質の良いものが得られない場合がある。また、塩を析出させるには、窒素雰囲気下で、50～140℃に加熱することが好ましい。

そして、析出物を、濾過、遠心分離など公知の方法により除去する。

5 好ましくは、濾過が用いられる。濾過によれば、簡易な装置により、連続的に除去することができる。

このような処理により得られたポリオールは、アミン類がほぼ完全に除去されており、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用することができる。すなわち、この処理方法では、有機ジカルボン酸またはその無水物を用いているので、塩酸を用いた場合に比べて、容易に塩を結晶化させて析出させることができるために、アミン類を簡単かつ効率よく除去して、品質の高いポリオールを得ることができる。しかも、有機ジカルボン酸またはその無水物は、塩酸に比べるとそれほどウレタン化反応を阻害するものではないので、再使用時において、ウレタン化反応を阻害するおそれも少なく、さらに、除去されたアミン類の塩を処分する場合においても、塩素のように有害物質が発生する可能性も少なく、環境汚染の原因となるおそれも少ない。

また、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理では、アミン類を含有するポリオールに、イソシアネート化合物を加えると、イソシアネート化合物の有するイソシアネート基が、アミン類の有するアミノ基と反応してポリ尿素体が生成され、これによって、アミン類が不活性化される。

なお、イソシアネート化合物の有するイソシアネート基は、ポリオールの有する水酸基とも反応可能であるが、イソシアネート基に対するアミノ基の反応性が、イソシアネート基に対する水酸基の反応性よりも高いため、アミン類を含有するポリオールに、イソシアネート化合物が加えられた時には、イソシアネート化合物のイソシアネート基は、アミン

類のアミノ基と選択的に反応する。

イソシアネート化合物は、少なくとも1個のイソシアネート基を有する化合物であって、例えば、フェニルイソシアネートなどのモノイソシアネート化合物や、ウレタン樹脂の原料として使用される、例えば、ジフェニルメタンジイソシアネート(MDI)、トリレンジイソシアネート(TDI)などの芳香族ジイソシアネート、例えば、キシリレンジイソシアネート(XDI)、テトラメチルキシリレンジイソシアネート(TMXDI)などの芳香脂肪族ジイソシアネート、例えば、3-イソシアナトメチル-3,5,5-トリメチルシクロヘキシルイソシアネート(IPDI)、4,4'-メチレンビス(シクロヘキシルイソシアネート)(H₁₂MDI)、ビス(イソシアナトメチル)シクロヘキサン(H₆XDI)などの脂環族ジイソシアネート、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート(HDI)などの脂肪族ジイソシアネートなどが用いられる。これらイソシアネート化合物は、1種または2種以上併用してもよく、分解、分離および回収の条件や、再使用に供する用途などにより、適宜選択される。

また、イソシアネート化合物を加える量は、ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、イソシアネート化合物のイソシアネート基が0.8~1.5当量、好ましくは、0.9~1.3当量となるような割合であることが好ましい。この当量より少ないと、イソシアネート化合物と反応しないアミノ基を有するアミン類の残存量が多くなり、このポリオールをポリウレタン樹脂の原料として再使用に供した時に、ポリイソシアネートとの正常な反応が進行せず、不良品を生じる場合がある。一方、この当量より多いと、イソシアネート化合物のイソシアネート基がポリオールとより多く反応してしまい、ポリオールの品質が低下する場合がある。

また、イソシアネート化合物を加える量は、ポリオール中に含まれる

1 級水酸基および 2 級水酸基の割合によっても、適宜変更することが好ましい。1 級水酸基は、2 級水酸基に比べてイソシアネート基との反応性が高いため、例えば、ポリオール中の 1 級水酸基含量が多い場合には、アミノ基に対するイソシアネート基の割合を多くするほうがよく、一方、ポリオール中の 2 級水酸基含量が多い場合には、例えば、アミノ基に対するイソシアネート基の割合を少なくする（例えば、当量比を 1.0 近傍にする。）ほうがよい。なお、ポリオール中に 1 級水酸基が多いか 2 級水酸基が多いかは、例えば、分解するポリウレタン樹脂の種類から判断すればよい。

10 また、この処理は、より具体的には、処理槽 8 内において、粗ポリオールを攪拌しつつ、上記した割合にてイソシアネート化合物を添加すればよい。この処理は、常温で行なってもよいが、ポリオールの粘度を低下させ、また、イソシアネート化合物とアミン類との反応を短時間に完結させるためには、例えば、50～100℃で行なうことが好ましい。

15 このような処理によると、分解回収されるポリオールにイソシアネート化合物を加えるのみで、アミン類を除去することなくそのまま不活性化することができ、簡易かつ工業的に実施にすることができ、しかも、このような処理によって得られるポリオールは、ウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、20 また、酸による中和処理のように酸価が高くなってしまうこともないので、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

25 なお、この処理により得られるポリオールは、ポリオール中に、アミン類とイソシアネート化合物とが反応したポリ尿素体が分散した性状（ポリ尿素体分散ポリオール）となるが、このようなポリ尿素体が分散していても、ポリオールの品質を特に阻害するものではなく、また、得られたポリオール中のポリ尿素体の割合や分散状態にもよるが、例えば、

ポリマー分散ポリオールなどの用途として使用することができる。

また、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理では、アミン類を含有するポリオールに、オキシド化合物を加えると、アミン類の有するアミノ基と開環反応し、水酸基（アルカノールアミン）となることにより、アミン類の活性が低減される。
5

なお、オキシド化合物の有するオキシド基は、ポリオールの有する水酸基とも反応可能であるが、オキシド基に対するアミノ基の反応性が、オキシド基に対する水酸基の反応性よりも高いため、アミン類を含有するポリオールに、オキシド化合物が加えられた時には、オキシド化合物
10 のオキシド基は、アミン類のアミノ基と選択的に反応する。

オキシド化合物は、少なくとも1個のオキシド基（エポキシ基、すなわち、炭素鎖によって結合されている2原子の炭素と結合する—O—原子団）を有する化合物であって、特に限定されることなく公知のオキシド化合物でよく、例えば、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシドなどのアルキレンオキシドや、ステレンオキシド、あるいは、フェニルグリシジルエーテルなどが用いられる。これらオキシド化合物は、1種または2種以上併用してもよく、分解、分離および回収の条件や、再使用に供する用途などにより、適宜選択される。これらのうち、アルキレンオキシドが好ましく用いられ、とりわけ、エチレンオキシドおよびプロピレンオキシドが好ましく用いられる。
15
20

また、オキシド化合物を加える量は、ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、オキシド化合物のオキシド基が1.5～3.0当量、好ましくは、2.0～2.5当量となるような割合であることが好ましい。この当量より少ないと、アミン類の活性を十分に低減できず、
25 このポリオールをポリウレタン樹脂の原料として再使用に供した時に、ポリイソシアネートとの正常な反応が進行せず、不良品を生じる場合がある。一方、この当量より多いと、オキシド化合物のオキシド基が、ア

ミン類のオキシド付加体の水酸基やポリオールの水酸基により多く付加してしまい、ポリオールの品質が低下する場合がある。

また、この処理は、より具体的には、処理槽8内において、窒素ガス雰囲気下、粗ポリオールを攪拌しつつ、上記した割合にてオキシド化合物を添加すればよく、とりわけ、無触媒下において行なうことが好ましい。無触媒下においては、オキシド化合物の有するオキシド基と、ポリオールの有する水酸基およびこの処理によって生成するアミン類のオキシド付加体の水酸基とが、ほとんど反応しないので、アミン類の有するアミノ基に対するオキシド化合物の有するオキシド基の選択性をより一層向上させて、オキシド化合物とアミン類との反応をより定量的に進行させることができる。

また、この処理では、粗ポリオールにオキシド化合物を加えた後、80～140℃、さらには、100～130℃で加熱することが好ましい。加熱することにより、ポリオールの粘度を低下させるとともに、オキシド化合物の有するオキシド基とアミン類の有するアミノ基との反応を促進して、反応を完結させるための時間を短縮することができる。なお、この処理において、圧力は常圧でもよいが、処理を促進するために、例えば、0.05～0.5 MPa程度加圧することが好ましい。

このような処理によると、分解回収されるポリオールにオキシド化合物を加えるのみで、アミン類を除去することなくそのまま不活性化することができ、簡易かつ工業的に実施にすることができ、しかも、このような処理によって得られるポリオールは、ポリウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、また、酸による中和処理のように酸価が高くなってしまうこともないので、品質の高いポリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

なお、この処理により得られるポリオールは、ポリオールと、アミン

類とオキシド化合物とが反応したアミン類のオキシド付加体との混合物となり、かつ、処理前に比べてオキシド化合物が付加した分、そのOH値が高くなる（例えば、ポリオール中に1重量%のトリレンジアミンが含有されている場合に、プロピレンオキシドがそのトリレンジアミンに5モル付加した場合には、計算上、そのOH値が約3.1高くなり、また、ポリオール中に5重量%のトリレンジアミンが含有されている場合に、プロピレンオキシドがそのトリレンジアミンに4モル付加した場合には、計算上、そのOH値が約3.2高くなる。）が、これらはポリオールの品質を特に阻害するものではなく、また、得られたポリオール中のアミン類のオキシド付加体の組成や割合にもよるが、例えば、従来より電気冷蔵庫などの断熱材の用途として処方されるポリオール系開始剤のポリオキシアルキレンポリオールと、アミン系開始剤のポリオキシアルキレンポリオールとの混合物からなるポリオールとして、そのまま使用することができる。

15 また、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理では、アミン類を含有するポリオールに、尿素を加えると、尿素と、アミン類の有するアミノ基との間において交換反応が生じ、脱アンモニアにより、尿素誘導体が生成され、これによって、アミン類が不活性化される。

20 尿素を加える量は、ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、0.4～1.5当量、好ましくは、0.5～1.2当量の割合であることが好ましい。この当量より少ないと、尿素と反応しないアミノ基を有するアミン類の残存量が多くなり、このポリオールをウレタン樹脂の原料として再使用に供した時に、ポリイソシアネートとの正常な反応が進行せず、不良品を生じる場合がある。一方、この当量より多いと、過剰の未反応の尿素が結晶化して、ポリオールの品質が低下する場合がある。

また、この処理は、より具体的には、処理槽8内において、粗ボリオールを攪拌しつつ、上記した割合にて尿素を添加すればよい。また、この処理は、加熱下において行なうことが好ましく、例えば、120～200℃、さらには、130～180℃で行なうことが好ましい。処理温度がこれより低いと、尿素とアミン類のアミノ基との反応が進行しない場合があり、また、処理温度がこれより高いと、尿素自体が分解する場合がある。また、この処理においては、アンモニアガスの生成を伴うので、例えば、処理槽8内に窒素ガスを吹き込んだり、あるいは、処理槽8内を減圧することにより、アンモニアガスを処理槽8（反応系）の外へ取り除くことが好ましい。

このような処理によると、分解回収されるボリオールに尿素を加えるのみで、アミン類を除去することなくそのまま不活性化することができ、簡易かつ工業的に実施にすることができ、しかも、このような処理によって得られるボリオールは、ウレタン樹脂の原料として再使用に供しても、アミン類によるウレタン化反応の阻害はなく、品質の高いボリオールとして、各種の分野において再使用に供することができる。

なお、この処理により得られるボリオールは、ボリオール中に、アミン類と尿素とが反応した尿素誘導体が分散した性状（尿素誘導体分散ボリオール）となり、例えば、処理前のボリオール中のアミン類の量や尿素の使用量により、濁りを生じたり、あるいは、結晶が析出した状態となる場合がある。このような場合には、処理槽8に、さらに濾過器などの濁りや結晶を除去するための手段を設けて、これら濁りや結晶を取り除いてもよい。また、このような濁りや結晶は、ボリオールの品質を特に阻害するものではないので、その目的および用途によっては、これら濁りや結晶を取り除かなくても、このような尿素誘導体が分散した性状のボリオール、例えば、ポリマー分散ボリオールなどの用途としてそのまま使用することができる。

なお、以上の説明においては、本発明の各種の処理、すなわち、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理、アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理を、流動化工程、加水分解工程および回収工程を備えるポリウレタン樹脂の分解回収方法の回収工程に適用する例をとって説明したが、これら各種の処理は、何らこのポリウレタン樹脂の分解回収方法に限定されることなく、上記した、
5 例えは、アルカリ分解法、グリコリシス法（グリコール分解法）、アミノリシス法（アミン分解法）などのいずれの分解法においても適用することができる。また、分解の対象とされるポリウレタン樹脂、ポリオールの種類および含有されるアミン類の種類なども、何ら限定されない。
10

実施例

15 以下に実施例および比較例を挙げ、本発明をより具体的に説明する。

A：有機ジカルボン酸またはその無水物による処理

流動化工程：

20 温度計、攪拌機及び窒素ガス導入管を備えた 500 ml の 4 つロフラスコ中に、トリレンジアミン 50 g と、ポリオキシプロピレントリオール（数平均分子量 3000）50 g とを仕込み、外部から加熱して 17 0 ℃ に昇温した。この液中に、トリレンジイソシアネート（タケネート 80：武田薬品工業（株）製）とポリオキシプロピレントリオール（数平均分子量 3000）とを用いて発泡させた密度 2.5 kg/m³ の軟質ポリウレタンフォームの裁断片 30 g を加え、同温度で 1 時間攪拌してフォームを完全に流動化（可溶化）させた。この液を 25 ℃ まで冷却し、
25 粘度を測定したところ約 10000 mPa · s であった。

加水分解工程：

次いで、温度計および圧力計を備えた内容積 200 ml のオートクレーブ中に、得られたフォームの溶解液 50 g と純水 50 g とを仕込み、窒素ガスで置換後、外部から加熱し、270 °Cまで加熱し、20 分間放置した。その後オートクレーブを室温まで冷却した後、得られた加水分解生成物を GPC により分析した結果、トリレンジアミン (TDA) と数平均分子量 3000 のポリオキシプロピレントリオールとに分解されていることが確認された。

回収工程：

得られた加水分解生成物において、ポリオキシプロピレントリオール (数平均分子量 3000) から TDA を除去するために減圧単蒸留を行なった。すなわち、まず、110 °Cで水を完全に留去した後、90 °Cの冷却水を流した蒸留装置に、加水分解生成物を仕込み、2000 Pa に減圧した後に昇温を行なった。先に低沸分が留去した後、塔温が 155 °Cに達したときに透明液体が留出した。塔温が下がり始め液が留出しなくなったところで単蒸留を終了した。残渣の TDA の濃度を、0.1 mol / l の過塩素酸・酢酸溶液で電位差滴定により測定すると、TDA が 2.0 重量 % まで留去されたことが確認された。

処理工程（実施例 1～4、比較例 1～5）：

上記回収工程で得られた単蒸留の残渣分を、4 つロフラスコに入れ 70 °Cまで昇温した後、表 1 に示す実施例 1～4 および比較例 1～5 の種々の酸を、TDA のアミノ基 1 当量に対して、0.5 および / または 1.0 倍当量添加した。その後、窒素ガスを吹き込みながら、徐々に昇温し 120 °Cで脱水を行ない、1 時間後に反応を終了して 70 °Cまで降温した後、300 メッシュの金網で沈殿物を濾別した。

表 1

	酸	当量	沈殿物	ろ過
実施例 1	シュウ酸(30wt%水)	0.5	あり	可能
実施例 2	シュウ酸(30wt%水)	1.0	あり	可能
実施例 3	無水マイレン酸	0.5	あり	可能
実施例 4	無水マイレン酸	1.0	あり	可能
比較例 1	塩酸(6mol/l)	0.5	あり	不可
比較例 2	塩酸(6mol/l)	1.0	あり	不可
比較例 3	酢酸	1.0	なし	—
比較例 4	ギ酸	1.0	なし	—
比較例 5	無水酢酸	1.0	なし	—

表 1 に示すように、酢酸、ギ酸、無水酢酸は沈殿物を生じなかったの
5 で、TDAを系中から除去することができなかった。

シュウ酸水溶液、無水マイレン酸、6 mol/l の塩酸は、白濁し塩
が析出した。しかし、6 mol/l の塩酸は塩が析出したものの、その
粒子が非常に細かく、300 メッシュの金網では濾別がほとんどできな
かった。なお、10000 min⁻¹、10 分間の遠心分離も試みたが、
10 沈降する塩はほとんど得られなかった。これに対し、シュウ酸水溶液お
よび無水マイレン酸をえたものでは、塩として沈殿物が析出し、また
その粒径が大きいため簡単に濾別することができた。

B : イソシアネート化合物による処理

流動化工程 :

15 温度計、攪拌器、および窒素ガス導入管を備えた2000 ml の4つ
口フラスコ中に、トリレンジアミン1000 g を仕込み、外部から加熱
して170℃に昇温した。この液中に、トリレンジイソシアネート(タ
ケネート80: 武田薬品工業(株) 製)とポリオキシプロピレントリオ
ール(数平均分子量3000)とを用いて発泡させた密度25 kg/m³

の軟質ポリウレタンフォーム 600 g を加え、同温度で 1 時間攪拌し、このポリウレタンフォームを完全に溶解させた。

加水分解工程：

次いで、温度計および圧力計を備えた内容量 4000 ml のオートクレーブ中に、上記で得られたポリウレタンフォーム溶解液 1000 g と純水 1000 g とを仕込み、窒素ガスで置換後、外部から加熱し、27 0 ℃まで加熱し、20 分放置した。その後オートクレーブを室温まで冷却した後、120 ℃で窒素ストリッピングにより脱水を行なった。内容物をメタノールで希釈し、GPCで分析した結果、ポリオールの領域についてでは、数平均分子量 3000 のポリオキシプロピレントリオールに相当するピーク以外に高分子量化合物は認められず、また、アミンの領域でもトリレンジアミンに相当するピークのみが認められた。また、NMR による分析の結果、分解生成物中には、ウレタン結合や尿素結合が存在しないことが分かった。

回収工程：

次に、得られた分解液を、280 ℃、2000 Pa で薄膜蒸留することにより、トリレンジアミンの除去を行ない、ポリオキシプロピレントリオールを残留液として回収した。トリレンジアミンの除去を行なった後の残留液中のトリレンジアミンの含量は、2.2 重量 % であり、残留液のアミン価は、20 mg KOH / g、粘度は、580 mPa · s / 25 ℃ であった。

処理工程 1 (実施例 5) :

上記回収工程で回収されたポリオキシプロピレントリオール 100 g を、温度計、攪拌機、および窒素ガス導入管を備えた 500 ml の 4 口フラスコ中に仕込み、65 ℃に加熱した後、テトラメチルキシリレンジイソシアネート (TMXDI) 4.4 g (NCO / NH₂ 当量比 1.0) を 16 分間で滴下した。その後、65 ℃で 1 時間エージングした後、

反応を終了した。反応後のポリオキシプロピレントリオールの粘度は、
1300 mPa·s / 25°C、アミン価は、3.0 mg KOH / g で
あり、このポリオキシプロピレントリオールを、ポリウレタンフォームの
原料として再使用しても、発泡に問題のないレベルまで、アミン価を低
5 減することができた。

処理工程 2 (実施例 6) :

上記回収工程で回収されたポリオキシプロピレントリオール 100 g
を、温度計、攪拌機、および窒素ガス導入管を備えた 500 ml の 4 つ
10 フラスコ中に仕込み、65°C に加熱した後、ビス (イソシアナトメチ
ル) シクロヘキサン (H₆XDI) 4.0 g (NCO / NH₂ 当量比 1.
2) を 7 分間で滴下した。その後、65°C で 1 時間エージングした後、
反応を終了した。反応後のポリプロピレントリオールの粘度は、300
0 mPa·s / 25°C、アミン価は、4.4 mg KOH / g であり、こ
のポリオキシプロピレントリオールを、ポリウレタンフォームの原料と
15 して再使用しても、発泡に問題のないレベルまで、アミン価を低減する
ことができた。

C : オキシド化合物による処理

流動化工程 :

温度計、攪拌器、および窒素ガス導入管を備えた 2000 ml の 4 つ
20 フラスコ中に、トリレンジアミン 500 g を仕込み、外部から加熱し
て 170°C に昇温した。この液中に、トリレンジイソシアネート (タケ
ネート 80 : 武田薬品工業 (株) 製) とポリオキシプロピレントリオー
ル (数平均分子量 3000) とを用いて発泡させた密度 25 kg / m³ の
軟質ポリウレタンフォーム 300 g を加え、同温度で 1 時間攪拌し、こ
25 のポリウレタンフォームを完全に溶解させた。

加水分解工程 :

次いで、温度計および圧力計を備えた内容量 2000 ml のオートク

レーブ中に、上記で得られたポリウレタンフォーム溶解液 500 g と純水 500 g とを仕込み、窒素ガスで置換後、外部から加熱し、270 ℃まで加熱し、この温度において 20 分放置した。その後オートクレーブを室温まで冷却した後、120 ℃で窒素ストリッピングにより脱水を行なった。内容物をメタノールで希釈し、GPCで分析した結果、ポリオールの領域については、数平均分子量 3000 のポリオキシプロピレントリオールに相当するピーク以外に高分子量化合物は認められず、また、アミンの領域でもトリレンジアミンに相当するピークのみが認められた。また、NMRによる分析の結果、分解生成物中には、ウレタン結合や尿素結合が存在しないことが分かった。

回収工程：

次に、得られた分解液を、280 ℃、2000 Pa で薄膜蒸留することにより、トリレンジアミンの除去を行ない、ポリオキシプロピレントリオールを残留液として回収した。トリレンジアミンの除去を行なった後の残留液の OH 価は、55 mg KOH / g、トリレンジアミンの含量は、2.2 重量%、アミン価は、20 mg KOH / g、粘度は、580 mPa · s / 25 ℃ であった。

処理工程（実施例 7）：

上記回収工程で回収されたポリオキシプロピレントリオール（残留液）100 g を、温度計、攪拌器、および冷却管を備えた 500 ml のオートクレーブ中に仕込み、外部から加熱して 120 ℃ に昇温した。内圧を 0.2 MPa に調節し、この残留液中にプロピレンオキシド 5.1 g（オキシド基 / アミノ基当量比 2.5）をポンプを使用して 1 時間かけて連続添加した。120 ℃ で 30 分エージングした後、未反応のプロピレンオキシドを窒素気流下で留去した。

この反応により、プロピレンオキシドのストリップ後のポリオキシプロピレントリオールは、その重量が 2.2 g 増加した。また、得られた

ポリオキシプロピレントリオールのOH価は、65mgKOH/gであり、処理前に対して10mgKOH/g増加した。また、その粘度は600mPa·s/25℃であった。これらの物性値から、処理後のポリオキシプロピレントリオールは、ポリウレタンフォームの原料として再使用に供することができるものであることが確認された。

D：尿素による処理

流動化工程：

温度計、攪拌器、および窒素ガス導入管を備えた2000mlの4つ口フラスコ中に、トリレンジアミン500gを仕込み、外部から加熱して200℃に昇温した。この液中に、トリレンジイソシアネート（タケネート80：武田薬品工業（株）製）とポリオキシプロピレントリオール（数平均分子量3000）とを用いて発泡させた密度25kg/m³の軟質ポリウレタンフォーム300gを加え、同温度で1時間攪拌し、このポリウレタンフォームを完全に溶解させた。

加水分解工程：

次いで、温度計および圧力計を備えた内容量2000mlのオートクレーブ中に、上記で得られたポリウレタンフォーム溶解液500gと純水500gとを仕込み、窒素ガスで置換後、外部から加熱し、300℃まで加熱し、この温度において20分放置した。その後オートクレーブを室温まで冷却した後、120℃で窒素ストリッピングにより脱水を行なった。内容物をメタノールで希釈し、GPCで分析した結果、ポリオールの領域については、数平均分子量3000のポリオキシプロピレントリオールに相当するピーク以外に高分子量化合物は認められず、また、アミンの領域でもトリレンジアミンに相当するピークのみが認められた。また、NMRによる分析の結果、分解生成物中には、ウレタン結合や尿素結合が存在しないことが分かった。

回収工程：

次に、得られた分解液を、280°C、2000Paで薄膜蒸留することにより、トリレンジアミンの除去を行ない、ポリオキシプロピレントリオールを残留液として回収した。トリレンジアミンの除去を行なった後の残留液中のトリレンジアミンの含量は、2.2重量%であり、残留液のアミン価は、20mgKOH/g、粘度は、580mPa·s/25°Cであった。

処理工程（実施例8）：

上記回収工程で回収されたポリオキシプロピレントリオール100gを、温度計、攪拌機、および窒素ガス導入管を備えた500mlの4つ口フラスコ中に仕込み、80°Cに加熱した後、尿素を2.5g (H₂NCO NH₂/NH₂当量比1.2) 添加した。その後、減圧下において、130°Cで3時間反応させた後、窒素によるストリッピングを2時間行ない、発生したアンモニアを完全に除去した。反応終了後、常温まで冷却した。反応後のポリオキシプロピレントリオールの粘度は、800mPa·s/25°Cで、アミン価は、3.1mgKOH/gであり、このポリプロピレントリオールを、ポリウレタンフォームの原料として再使用しても、発泡に問題のないレベルまで、アミン価を低減することができた。

なお、上記の説明は、本発明の例示の実施形態および実施例として提供したが、これは單なる例示に過ぎず、限定的に解釈してはならない。当該技術分野の当業者によって明らかな本発明の変形例は、後記の特許請求の範囲に含まれるものである。

産業上の利用可能性

以上のように、本発明の分解回収ポリオールの処理方法は、ポリウレタン樹脂を分解することによって得られる分解回収ポリオールを処理するため、好適に用いることができ、より具体的には、ポリウレタン樹脂を加水分解する加水分解工程、および加水分解により生成した分解生

成物を回収する回収工程を備えるポリウレタン樹脂の分解回収方法の、回収工程に、好適に適用することができる。

請 求 の 範 囲

1. ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、その分解回収ポリオールを再使用に供し得るようにアミン類を処理することを特徴とする、分解回収ポリオールの処理方法。
5
2. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去することによって処理することを特徴とする、請求の範囲第1項記載の分解回収ポリオールの処理方法。
10
3. 有機ジカルボン酸またはその無水物が、シュウ酸であることを特徴とする、請求の範囲第2項記載の分解回収ポリオールの処理方法。
4. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を、アミン類のアミノ基1当量あたり有機ジカルボン酸
15 またはその無水物のカルボキシル基が0.3～1.05当量となるような割合で加えることを特徴とする、請求の範囲第2項記載の分解回収ポリオールの処理方法。
5. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加えることによって処理することを特徴とする、請求の範囲第1項
20 記載の分解回収ポリオールの処理方法。
6. アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、イソシアネート化合物を、そのイソシアネート化合物のイソシアネート基が0.8～1.5当量となるような割合で加えることを特徴とする、請求の範囲第5項記載の分解回収ポリオールの処理方法。
25
7. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加えることによって処理することを特徴とする、請求の範囲第1項記載の

分解回収ポリオールの処理方法。

8. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を無触媒下において加えることを特徴とする、請求の範囲第7項記載の分解回収ポリオールの処理方法。

5 9. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加え、80～140℃で加熱することを特徴とする、請求の範囲第7項記載の分解回収ポリオールの処理方法。

10 10. アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、オキシド化合物を、そのオキシド化合物のオキシド基が1.5～3.0当量となるような割合で加えることを特徴とする、請求の範囲第7項記載の分解回収ポリオールの処理方法。

11. アミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加えることによって処理することを特徴とする、請求の範囲第1項記載の分解回収ポリオールの処理方法。

15 12. アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類のアミノ基1当量に対して、尿素を、0.4～1.5当量の割合で加えることを特徴とする、請求の範囲第11項記載の分解回収ポリオールの処理方法。

13. アミン類を含有する分解回収ポリオールが、ポリオキシアルキレンポリオールであることを特徴とする、請求の範囲第1項、第2項、第5項、第7項および第11項のいずれかに記載の分解回収ポリオールの処理方法。

20 14. アミン類を含有する分解回収ポリオール中のアミン類の含量が、5重量%以下であることを特徴とする、請求の範囲第1項、第2項、第5項、第7項および第11項のいずれかに記載の分解回収ポリオールの処理方法。

25 15. ポリウレタン樹脂を加水分解する加水分解工程、および

加水分解により生成した分解生成物を回収する回収工程を備えるポリウレタン樹脂の分解回収方法の、

回収工程に適用される、請求の範囲第1項、第2項、第5項、第7項および第11項のいずれかに記載の分解回収ポリオールの処理方法。

5 16. ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、有機ジカルボン酸またはその無水物を加えた後、析出物を除去する処理を行なうことによって得られることを特徴とする、分解回収ポリオール。

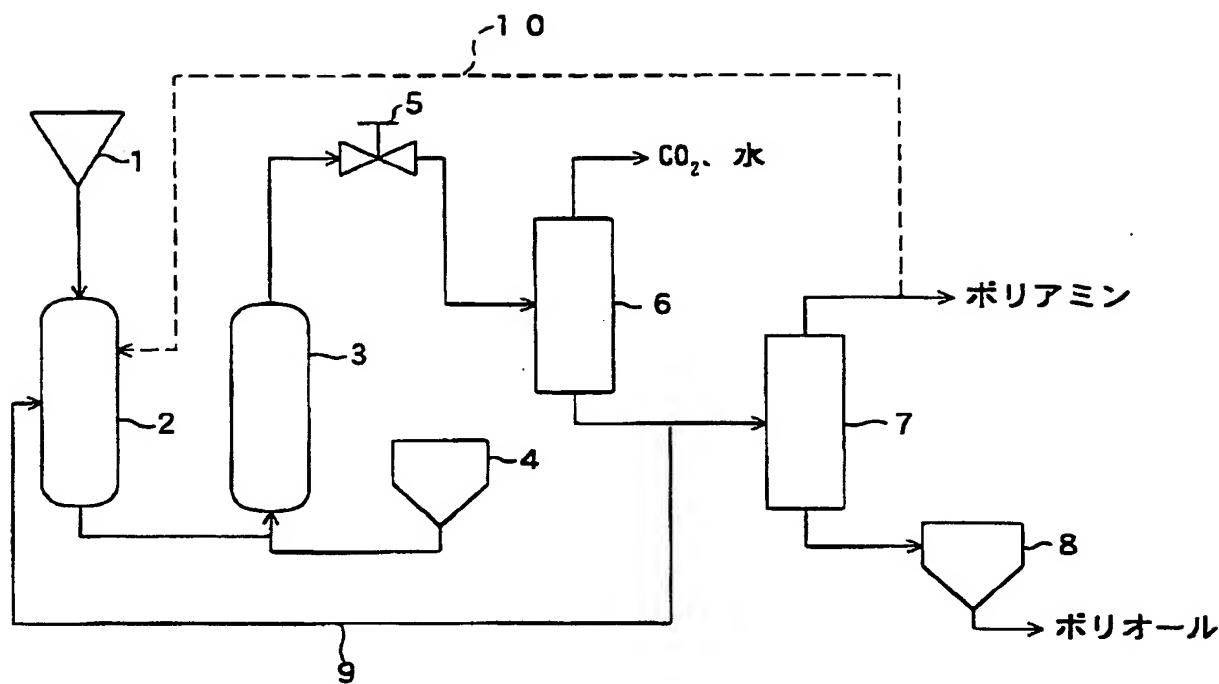
10 17. ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、イソシアネート化合物を加える処理を行なうことによって得られることを特徴とする、分解回収ポリオール。

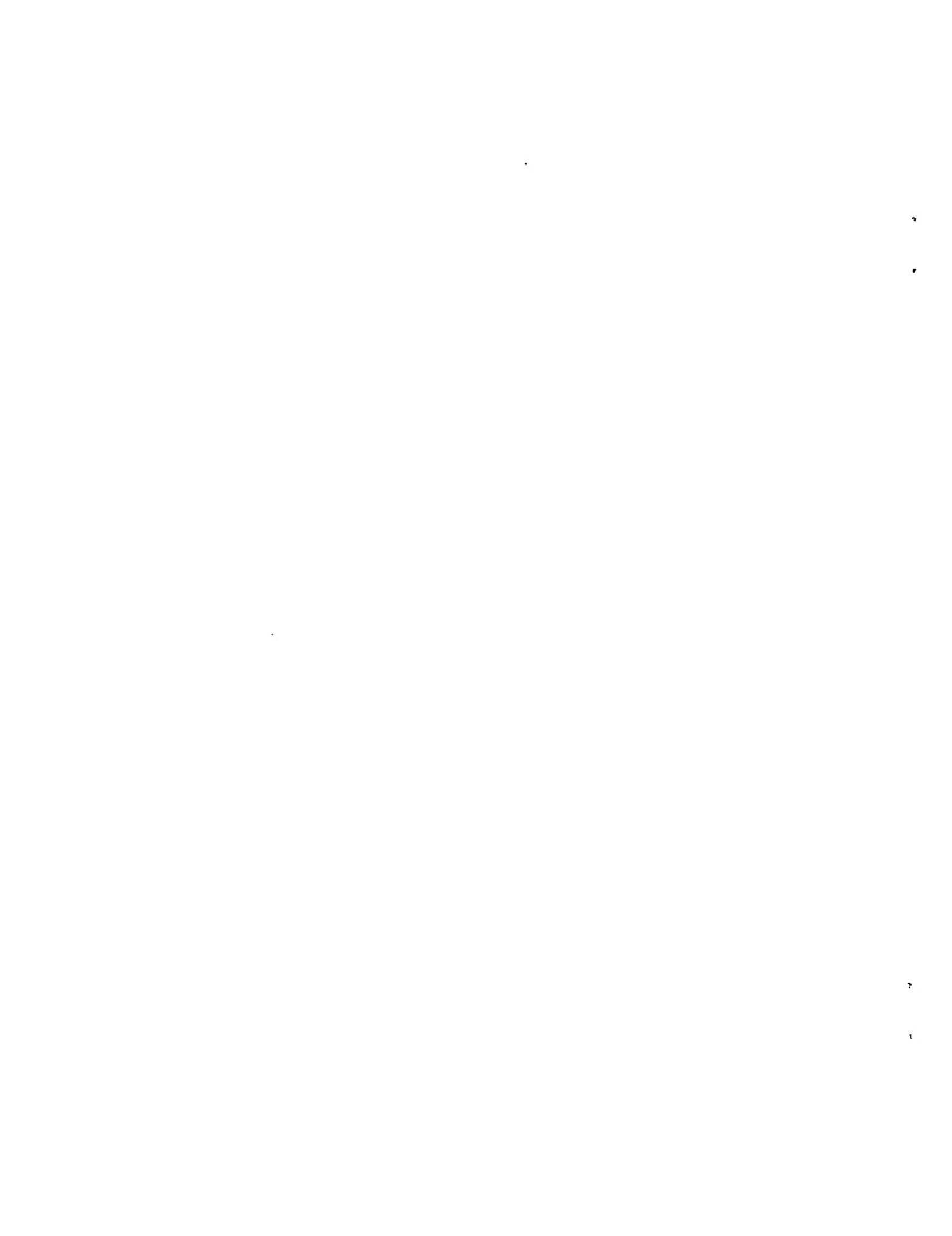
18. ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、オキシド化合物を加える処理を行なうことによって得られることを特徴とする、分解回収ポリオール。

15 19. ポリウレタン樹脂を分解することによって得られるアミン類を含有する分解回収ポリオールに、尿素を加える処理を行なうことによつて得られることを特徴とする、分解回収ポリオール。



第1図





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05748

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl' C08J11/26, C08G18/83 // C07C29/88, C07C31/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl' C08J11/00-11/26, C08G18/83

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPIL

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 52-139196, A (Koukoku Kagaku Kogyo K.K.), 19 November, 1977 (19.11.77),	1,2,4,13-16
A	Claims; page 3, upper left column, line 11 to upper right column, line 1; page 3, lower left column, lines 16 to 17 (Family: none)	3
X	CA, 2242980, A (BASF Aktiengesellschaft), 26 February, 1999 (26.02.99), page 5, lines 1 to 7; page 5, lines 15 to 19; page 10, lines 28 to 30 & JP, 11-158320, A & DE, 19737184, A & EP, 899292, A	1,5,6, 13-15, 17
X	JP, 07-224141, A (Toyo Tire and Rubber Co., Ltd.), 22 August, 1995 (22.08.95), Par. Nos. [0009], [0015], [0016], [0019] to [0020] (Family: none)	1,7-10,13-15, 18
A	JP, 54-078798, A (ASAHI DENKA KOGYO K.K.), 23 June, 1979 (23.06.79), Claims (Family: none)	1,11-15,19

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

Special categories of cited documents:	
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
02 November, 2000 (02.11.00)

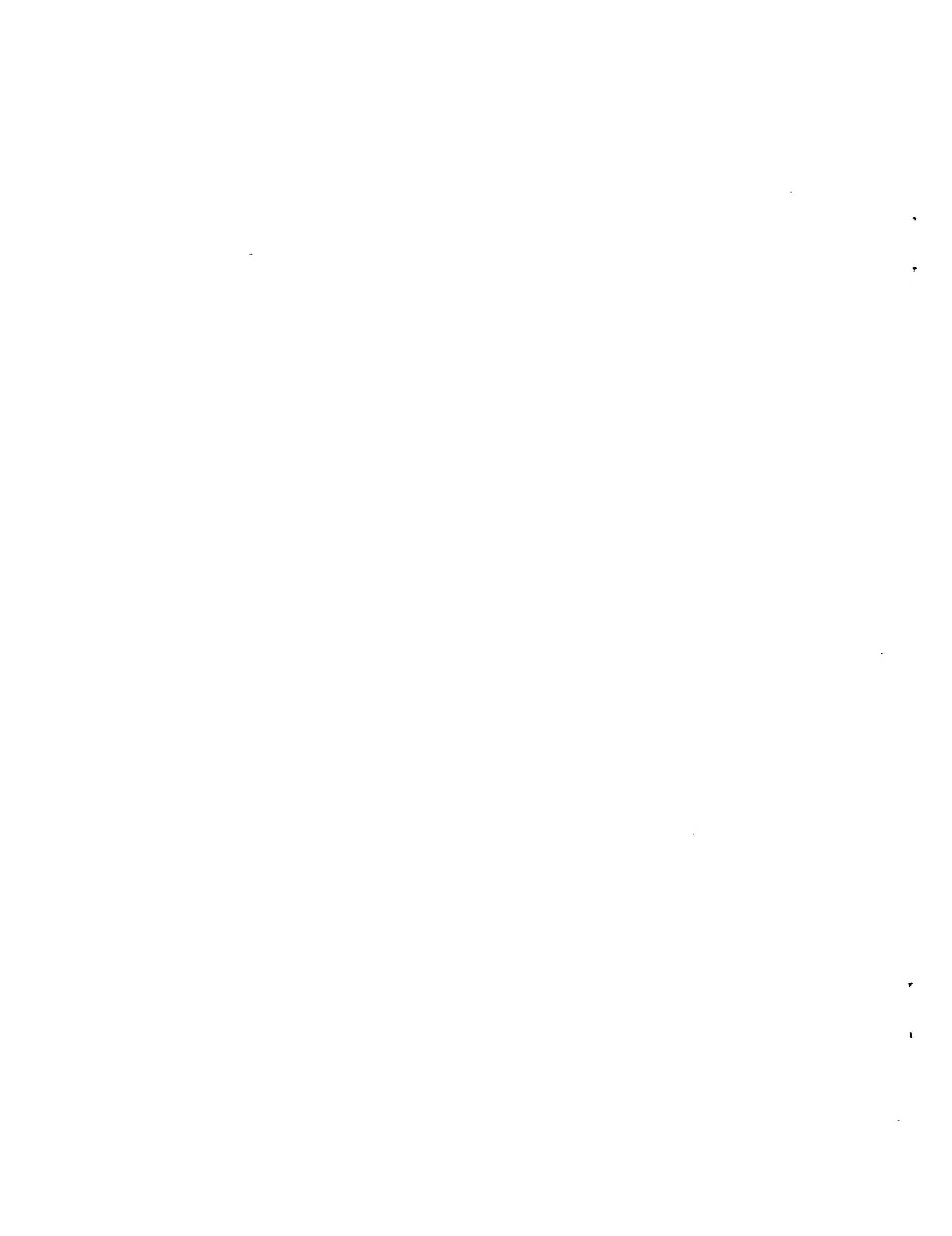
Date of mailing of the international search report
21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08J 11/26, C08G 18/83 // C07C 29/88, C07C 31/18

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08J 11/00-11/26, C08G 18/83

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 52-139196, A (興国化学工業株式会社) 19.11月.1977 (19.11.77) 特許請求の範囲、第3頁左上欄第11行目～右上欄第1行目、第3頁左下欄第16行目～第17行目 (ファミリーなし)	1, 2, 4 13-16
A		3
X	C A, 2242980, A (BASF Aktiengesellschaft) 26.2月.1999 (26.02.99) 第5頁第1行目～第7行目、第5頁第15行目～第19行目、第10頁第28行目～第30行目 & J P, 11-158320, A & D E, 19737184, A & E P, 899292, A	1, 5, 6, 13-15, 17

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

増田亮子

印

印

電話番号 03-3581-1101 内線 3419

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
X	JP, 07-224141, A (東洋ゴム工業株式会社) 22.8月.1995 (22.08.95) 段落番号[0009], [0015], [0016], [0019]-[0020] (ファミリーなし)	1, 7- 10, 13- 15, 18
A	JP, 54-078798, A (旭電化工業株式会社) 23.6月.1979 (23.06.79) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 11- 15, 19